

16 C 411
 (16 C 411.12)
 (16 D 1)
 (13 F 121)

特 許 序
 特 許 公 報

特許出願公告

昭42-6894

公告 昭 42. 3. 20

(全9頁)

フェノールの選択的メチル化方法

特 願 昭 40-31041
 出 願 日 昭 40. 5. 25
 優先権主張 1964. 5. 29 (アメリカ国)
 1371189/
 発 明 者 ステフエン・ビー・ハミルトン・
 ジュニア
 アメリカ合衆国ニューヨーク州ス
 ケネクタデー市 ヴルーマン・ア
 ヴェニュー931
 出 願 人 デネラル・エレクトリック・コム
 パニー
 アメリカ合衆国ニューヨーク州ス
 ケネクタデー5、リヴァーロード
 1
 代 表 者 ローザ・ミツチエリス
 代 理 人 弁理士 安達世股 外1名

発明の詳細な説明

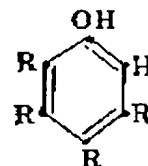
本発明は少なくとも1個のオルソ位水素を有するフェノール類のオルソ位置をメチル化する方法に関する。特に、本発明はオルソ位置に少なくとも1個の水素を有するフェノールをメタノールと、触媒としての酸化マグネシウムの存在下に475〜600℃の範囲内の触媒床温度において気相反応せしめる方法に関する。この反応は大気圧で容易に進行するが、大気圧以下あるいは以上の圧力で進行することも出来る。

少なくとも1個のオルソ位水素を有するフェノール、すなわち少なくとも一つの未置換オルソ位置を有するフェノール、たとえばフェノール、クレゾール(o-, m-及びp-) 2, 4-キシレノール、2, 3-キシレノール及び3, 5-キシレノールを種々の金属酸化物を触媒として用いて気相中でメチルアルコールあるいはメチルエーテルでメチル化することは公知である。ペンタ置換フェノールの製造のために特に適した方法は、アルコールあるいはエーテルのいずれかをアルキル化剤として用い、金属酸化物たとえば酸化アルミニウム、酸化トリウム、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化クロム、酸化マンガ、酸

化マグネシウム、酸化カルシウム、及び酸化バリウム等を触媒として使用する。アルミナは特に望ましい触媒である。

この反応は大気圧以上の圧力で300℃から450℃までの範囲の温度で行なわれる。約430℃以上の温度は所望のフェノール系化合物の収量を減少させる。フェノールとメタノールを約450℃以上の温度で反応させると、非フェノール化合物であるヘキサメチルベンゼンの生成が主として行なわれる。メタノールとフェノール、キシレノールまたはクレゾールとの反応に対しては高度のアルキル化フェノールの高収率を得るのに350〜430℃の温度が望ましい。

本発明によれば、メタノールを一般式



(ただし、各Rはメチル、フェニルあるいはメチル置換フェニルの如き一価置換基及び水素を示す)

のフェノールと気相において、触媒として酸化マグネシウムの存在下に反応せしめることにより、オルソ位においてフェノールを接觸的にメチル化する方法において、触媒床温度が475〜600℃であることを特徴とする方法を提供する。

この新規方法は非常に高度のオルソ選択性をもつてモノ-オ-メチルまたはジ-オ-メチルフェノールを高収率(高転化率)で生成するための方法である。すなわち、出発フェノールの高割合が、アルキル化がオルソ位置の唯一つあるいは両方で生じた生成物に転化するのである。酸化マグネシウムは、475℃から600℃までの触媒床温度で使用した場合、メタノールと、少なくとも1個のオルソ水素を有するフェノールとの反応に対して、特異的な触媒である。この温度範囲においては、少なくとも1個の非置換オルソ位置(少なくとも1個のオルソ位置に水素が存在する)を有するフェノールのオルソアルキル化は、このフェノールが非置換のメタ及びパラ位を有していたとしても、ほとんど独占的に起こる。フェノール自身ですら、メタあるいはパラ置換フェノール、